



IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

IN RE APPLICATION OF: Kenji MIWA, et al.

SERIAL NO: 09/158,099

FILED: September 22, 1998

FOR: METHOD OF REFINEMENT OF MICROSTRUCTURE OF METALLIC MATERIALS

GAU: 1742

EXAMINER:

**REQUEST FOR PRIORITY UNDER 35 U.S.C. 119
AND THE INTERNATIONAL CONVENTION**

ASSISTANT COMMISSIONER FOR PATENTS
WASHINGTON, D.C. 20231

SIR:

In the matter of the above-identified application for patent, notice is hereby given that the applicants claim as priority:

| <u>COUNTRY</u> | <u>APPLICATION NUMBER</u> | <u>MONTH/DAY/YEAR</u> |
|----------------|---------------------------|-----------------------|
| JAPAN | 9-275330 | September 22, 1997 |

P-1742
OCT 21 1998
GROUP 1500

A Certified copy of the corresponding Convention Application

- is submitted herewith
- will be submitted prior to payment of the Final Fee
- were filed in prior application Serial No. filed
- (A) Application Serial No.(s) were filed in prior application Serial No. filed ; and
- (B) Application Serial No.(s)
 - are submitted herewith
 - will be submitted prior to payment of the Final Fee

Respectfully Submitted,

OBLON, SPIVAK, McCLELLAND,
MAIER & NEUSTADT, P.C.

Marvin J. Spivak
Registration No. 24,913

John K. Pike, Ph.D.
Registration No. 41,253

Fourth Floor
1755 Jefferson Davis Highway
Arlington, Virginia 22202
(703) 413-3000
Fax No. (703) 413-2220
(OSMMN 7/98)

091158, 049

O P E
JUN 27 1998
JCS
PATENT & TRADEMARK OFFICE
JAPANESE GOVERNMENT

日本特許庁
 PATENT OFFICE
 JAPANESE GOVERNMENT

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日
Date of Application: 1997年 9月22日

出願番号
Application Number: 平成 9年特許願第275330号

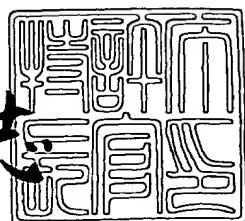
出願人
Applicant(s): 工業技術院長
新エネルギー・産業技術総合開発機構

RECEIVED
GROUP 1500
JUN 29 PM 2:03

1998年 8月28日

特許庁長官
Commissioner
Patent Office

佐山 建志



出証番号 出証特平10-3069456

【書類名】 特許願

【整理番号】 NP-91038

【特記事項】 特許法第30条第1項の規定の適用を受けようとする特許出願

【提出日】 平成 9年 9月22日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 B22D 27/20
C22F 3/00
C21D 10/00
C22C 1/02

【発明の名称】 金属組織微細化法

【請求項の数】 3

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県名古屋市名東区梅森坂2丁目1030番地

【氏名】 三輪 謙治

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県名古屋市名東区平和が丘1丁目70番地 猪子石
住宅1棟501号

【氏名】 西尾 敏幸

【発明者】

【住所又は居所】 東京都豊島区東池袋三丁目1番1号 新エネルギー・産業技術総合開発機構内

【氏名】 ラジャイ アリレザ

【特許出願人】

【識別番号】 000001144

【氏名又は名称】 工業技術院長 佐藤 壮郎

【特許出願人】

【識別番号】 591045482

【住所又は居所】 東京都豊島区東池袋3丁目1番1号

【氏名又は名称】 新エネルギー・産業技術総合開発機構

【代表者】 岩崎 八男

【指定代理人】

【識別番号】 220000334

【氏名又は名称】 工業技術院名古屋工業技術研究所長 種村 栄

【代理関係の特記事項】 特許出願人 工業技術院長 佐藤 壮郎の指定代理人

【復代理人】

【識別番号】 100102004

【弁理士】

【氏名又は名称】 須藤 政彦

【電話番号】 0352027423

【代理関係の特記事項】 特許出願人 工業技術院長 佐藤 壮郎の復代理人

【代理人】

【識別番号】 100102004

【弁理士】

【氏名又は名称】 須藤 政彦

【電話番号】 0352027423

【代理関係の特記事項】 特許出願人 新エネルギー・産業技術総合開発機構の代理人

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【物件名】 発明の新規性の喪失の例外の適用を受けるための証明書

【書類名】 明細書

【発明の名称】 金属組織微細化法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 電磁振動力や超音波振動力などの高エネルギー振動力を溶融金属に直接付与することにより、溶融金属中にキャビテーション（空孔）を生じさせ、その消滅時に発生する衝撃圧力で、生成してくる固体金属結晶粒子を破碎分断して微細化することを特徴とする金属組織を微細化する方法。

【請求項 2】 前記金属として凝固しつつある過程で高エネルギー振動力を付与することを特徴とする請求項 1 に記載の金属組織を微細化する方法。

【請求項 3】 前記溶融金属又は凝固しつつある金属に電流と磁場を同時に印加することにより、凝固進行中の金属に高エネルギー振動力を付与することを特徴とする請求項 1 又は 2 に記載の金属組織微細化法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

この発明は金属組織の微細化方法に関する。さらに詳しくは、本発明は、微細化剤や金属の種類に依ることなく金属組織を微細化することを可能とする新しい方法であって、電磁振動力や超音波振動力などの高エネルギー振動力を溶融金属に直接付与することを特徴とする金属組織の微細化方法に関する。

【0002】

【従来の技術】

金属組織の微細化方法は、溶融した金属中に微細化剤を添加して凝固後の組織を微細化する方法と、固体金属に加工熱処理を施すことにより組織を微細化する方法との二種類に大きく分類される。

【0003】

詳述すると、前者の方法では、凝固時に生成する固体金属結晶粒子の核の作用を微細化剤が担い、微細化剤の分散状態に応じた微細化組織が得られる。後者の方法では、圧延や押出しなどの強加工後に熱処理することにより金属が再結晶をおこす結果、組織が微細化する。

【0004】

しかしながら、前者の方法において、微細化剤が有効に作用するためには、微細化剤と固体結晶粒子との間に結晶学的な近似関係が必要であり、金属の種類によっては適切な微細化剤が得られない場合があった。

また、微細化の程度も、微細化剤粒子の大きさ以上には小さくすることができなかった。

【0005】

後者の方法においては、圧延や押出しなどの強加工には限界があり、それを超えると金属が破壊してしまうことや強加工後の熱処理により金属が再結晶すると同時に粗大化しがちであるため、十分な微細化が得られなかった。

したがって、従来方法の上記問題点を解消し得る新しい金属組織の微細化方法を開発することが強く求められていた。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】

本発明はこのような課題を解決するためになされたものである。

すなわち、本発明は、金属の成分や種類に依ることなく金属組織の微細化を可能とする新しい金属組織の微細化方法を提供することを目的とする。

また、本発明は、従来、微細化が難しかった金属をも容易に微細化させることができる金属組織の微細化法を提供することを目的とする。

【0007】

【課題を解決するための手段】

上記課題を解決する本発明は、以下の技術的手段からなる。

(1) 電磁振動力や超音波振動力などの高エネルギー振動力を溶融金属に直接付与することにより、溶融金属中にキャビテーション（空孔）を生じさせ、その消滅時に発生する衝撃圧力で、生成してくる固体金属結晶粒子を破碎分断して微細化することを特徴とする金属組織を微細化する方法。

(2) 前記金属として凝固しつつある過程で高エネルギー振動力を付与することを特徴とする前記(1)に記載の金属組織を微細化する方法。

(3) 前記溶融金属又は凝固しつつある金属に電流と磁場を同時に印加すること

により、凝固進行中の金属に高エネルギー振動力を付与することを特徴とする前記（1）又は（2）に記載の金属組織微細化法。

【0008】

【発明の実施の形態】

次に、本発明についてさらに詳細に説明する。

而して、本願の発明は、金属に直接高エネルギー振動力を付与することにより、組織を微細化することを特徴とする。この場合、高エネルギー振動力として、電流と磁場を同時に印加することが重要であり、電流又は磁場の一方だけの印加では金属組織の微細構造に顕著な効果を与えることができない。その理由は、電磁振動力はローレンツ力であり、電流と磁場とを同時に印加した場合にのみ発生するからである。

高エネルギー振動力としては、具体的には、例えば、電磁振動力や超音波振動力などが好適なものとして例示されるが、これらに限らず、同様に溶融金属に高エネルギー振動力を付与できるものであればその種類を問わず使用することができる。

高エネルギー振動力は、溶融金属に付与するが、この場合、好適には、凝固しつつある金属に高エネルギー振動力を付与することが望ましい。

ここで溶融金属とは、融点以上の温度に保持した時に、完全に液体状態になっている金属を意味する。また、凝固しつつある金属とは融点より低い温度において、液体状態の金属中に固体の金属結晶を発生しつつある金属を意味する。

本発明は、例えば、Al-Si合金などのアルミニウム合金やマグネシウム合金などに好適に適用されるが、本発明は、微細化剤や金属の如何を問わず適用することが可能であり、特に、金属の成分や種類には依らないことを特徴とする。

【0009】

上記方法に従って高エネルギー振動力を凝固しつつある金属に付与した場合、溶融金属中にキャビテーション（空孔）が生じ、それが消滅する時に発生する衝撃圧力で、生成してくる固体金属結晶粒子が破碎分解されることにより微細化できる。

【0010】

溶融金属が残っている間はキャビテーションを生じるため、溶融金属が凝固完了するまで高エネルギー振動力を付与することにより、新たに生成する固体金属結晶はもちろん、既に生成している固体金属結晶も破碎分断され、微細化できる。

従って、凝固後の金属組織も微細化される。

【0011】

高エネルギー振動力の付与は金属が凝固しつつある時（過程）が望ましい。凝固完了後に高振動エネルギーを付与した場合、キャビテーション（空孔）が発生できなくなるので固体金属結晶粒子を破碎分断できなくなってしまう恐れがある。

【0012】

また、高振動エネルギー付与による微細化効果は金属の成分や種類に依らないため、従来の方法では微細化させ難かった金属も容易に微細化できるようになる。

本発明の高振動エネルギー付与による金属組織の微細化方法により、例えば、過共晶アルミニウム-ケイ素合金における初晶粒子であるケイ素結晶の場合、3.0~0.5 μm のレベルの結晶粒子径に微細化することが可能である。

【0013】

【実施例】

次に、本発明の一実施例を示して本発明を具体的に説明するが、本発明は該実施例に限定されるものではない。

図1は本発明を実施する装置の一例を示したもので、図中10は試料金属、11はこれに接して配置された電極、12は試料金属を取り巻くように配置された電磁石コイルである。

【0014】

電極を介して試料金属に交流電流約80Aを通電すると、ジュール熱を発生して試料金属が溶解し所定の温度になる。この後、電流量を減少することにより、溶融金属試料の温度が低下し、凝固を開始する。この時、電磁石12により直流磁場1.4T（テスラ）を印加することにより、交流電流と直流磁場による電磁

振動力を発生し、溶融金属試料は振動する。その結果、キャビテーションを発生し、凝固金属結晶を破碎分解する。

【0015】

上記装置を使用し、過共晶組成 (hyper-eutectic) のアルミニウム-17%ケイ素合金に対して、凝固進行中の合金に電磁振動力を付与した。その結果を表1に示す。表1に示しているように、初晶粒子であるケイ素結晶を著しく微細化することができた。

【0016】

【表1】

| | | 結晶粒子径 (μm) |
|------|-------------|------------|
| 本発明例 | 高振動エネルギーの導入 | 0.5~3 |
| 従来例 | 微細化剤の使用 | 30~50 |

【0017】

以上、本発明の一実施例を詳述したが、これはあくまで一例示を示すものであり、他の金属、合金、金属間化合物、半金属、非金属等についても同様の効果を得ることができる。本発明はその主旨を逸脱しない範囲において当業者の知識に基づき様々な変更を加えた態様で実施可能である。

【0018】

【発明の効果】

本発明は、電磁振動力や超音波振動力などの高エネルギー振動力を溶融金属に直接付与することにより、溶融金属中にキャビテーション（空孔）を生じさせ、その消滅時に発生する衝撃圧力で、生成してくる固体金属結晶粒子を破碎分断して微細化することを特徴とする金属組織を微細化する方法に係るものであり、本

発明によれば、微細化剤を使用することなく、また、金属の成分や種類に依ることなく、金属組織を容易に微粒子のレベルに微細化することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】

本発明を実施するのに好適な装置の一例を示す説明図である。

【符号の説明】

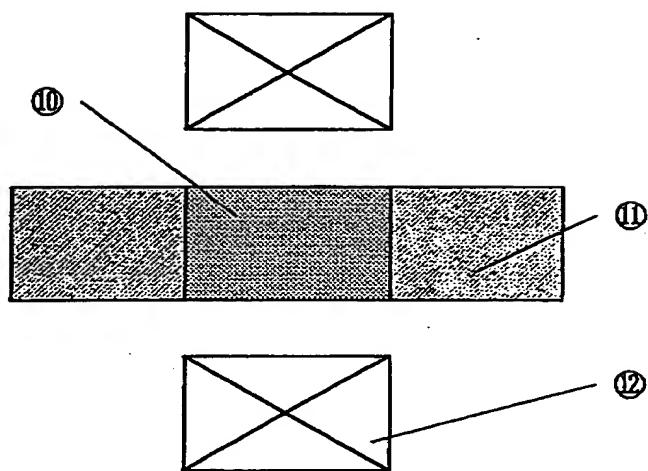
10 試料金属

11 電極

12 電磁石コイル

【書類名】 図面

【図1】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 金属組織を微細化する方法を提供する。

【解決手段】 凝固しつつある金属に高エネルギー振動力を付与することにより、溶融金属中にキャビテーション（空孔）を発生させ、その消滅時に発生する衝撃圧力で新たに生成する固体結晶粒子を破碎分解し、材料の組織を微細化する方法。金属試料10に交流電流を通電するための電極11、直流磁場を印加する電磁石12からなる装置において、電流と磁場を同時に印加することにより、凝固進行中の金属試料に高エネルギーの電磁振動力を付与し、固体結晶粒子を破碎分解し、微細組織の形成を行う。

【選択図】 図1

新規性喪失の例外証明書

発明の新規性の喪失の例外の規定の適用を受ける
ための証明書（特許法第30条第1項に規定する
発明であることを証明する書面）

1. 本特許出願に係る発明について、下記の刊行物に発表。

（1）日本金属学会講演概要、第245頁、平成9年3月26日発行

2. 添付書類の目録

（1）日本金属学会講演概要、第245頁、平成9年3月26日発行（写）

1通

昭和62年6月6日 第3種郵便物認可・平成9年3月26日発行 「まてりあ」第36巻 特別増刊 ISSN 1342-6730

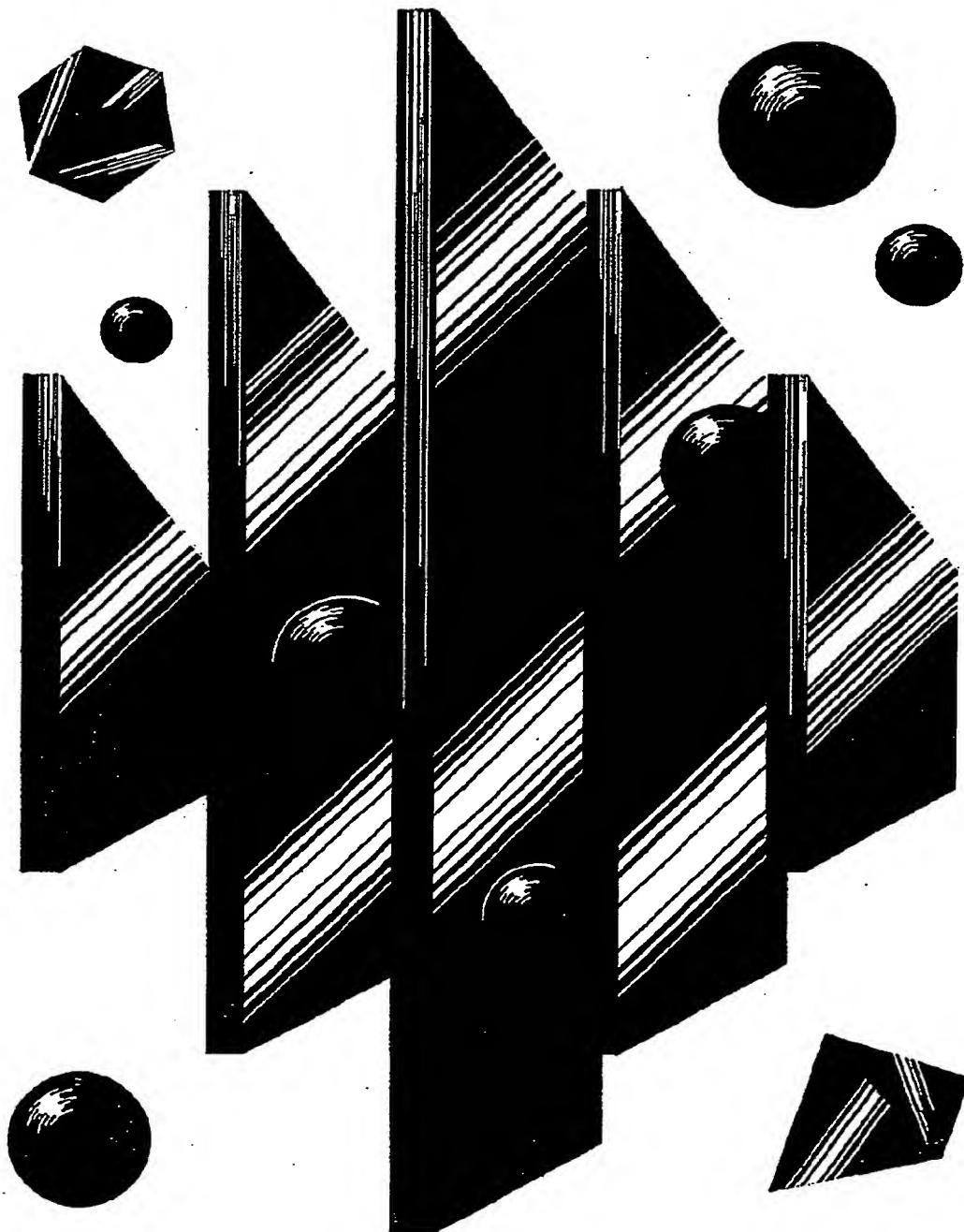
日本金属学会講演概要

Abstracts of the Japan Institute of Metals

1997年春期(第120回)大会

会期: 1997年3月26日~28日

会場: 東京理科大学神楽坂校舎



(626) 低液相量で押し出し成形したマグネシウム合金の組織と機械的性質

名工研 ○西尾敏幸、小林慶三、尾崎公洋、杉山 明、三輪 康治

【目的】マグネシウムは最も軽量な実用金属で資源的にも豊富な金属である。しかし、溶融状態では極めて活性であることから、鋳造時には発火の危険が伴い不活性ガスを必要とする。そこで、発火の危険性の低い低液相量での半溶融状態を利用した成形法において、初期材料（押し出し前）の組織が押し出し中にどのように変化するかを、組織観察と硬度測定により調査した。

【実験方法】市販 AZ91D 合金を再溶解し、溶湯過熱処理によって結晶粒径を微細化した母材を作製した。次に、この母材を加工した丸棒（A）と母材を旋盤により切削した切削粉（B）、および、この切削粉を不活性ガス雰囲気内で 25 時間メカニカルグライティングした粉末（C）の 3 種類を準備した。切削粉および粉碎粉については、あらかじめ 673K でブリフォームし相対密度 0.99 とした。押し出しは、これらの材料を平衡状態図上から求めた液相率が約 5 % に相当する温度 (723K) で、押し出し比 25:1 で行い、押し出し材のミクロ組織観察とマイクロビッカース硬度の測定を行った。

【結果】初期材料の結晶粒径は A から C へと細くなっていた。また、押し出し成形材は、いずれの試料についても可能であった。押し出し材の結晶粒径はダイス部で小さくなっていた。また、押し出し材は、これらの材料を平衡状態図上から求めた液相率が約 5 % に相当する温度 (723K) で、押し出し比 25:1 で行い、押し出し材のミクロ組織観察とマイクロビッカース硬度の測定を行った。

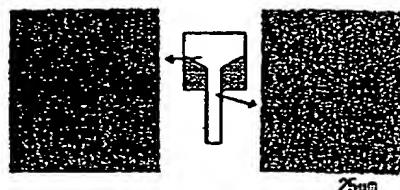


図 1 押し出し材 (C) の組織

(627) Effect of Electromagnetic Vibrations on the Microstructure of Al-Si Alloys

A. Radjai¹⁾, K. Miwa²⁾, T. Nishio²⁾¹⁾NEDO Industrial Technology R&D Dept., ²⁾National Industrial Research Inst. of Nagoya

In order to study the effects of electromagnetic vibrations induced by alternating electric and stationary magnetic fields on the solidified structure of Al-Si alloys, an experimental apparatus which enables the simultaneous application of electric and magnetic fields under different cooling conditions, ranging from rapid to furnace cooling, was developed. Vibrations were induced in a hyper-eutectic Al-Si alloy containing suspended silicon particles and the effects were studied. The mechanism by which vibrations bring about microstructural changes was investigated by interrupting the process at different temperatures before and after the start of solidification through water quenching. The conditions for obtaining identical cooling rates in experiments with different experimental conditions were established which permit the exclusion of the effects caused by differences in cooling rates and recognition of the ones merely caused by electromagnetic vibrations.

It was found that the application of any of the two fields alone had no significant effect on the microstructure of the alloys, while profound effects were observed when the two fields were applied simultaneously. Suspended silicon particles multiplied in number with a reduction in size by vibrations at temperatures higher than the liquidus and agglomerated and repelled to the outer surface after the start of solidification. Metallographic observations showed that the cavitation phenomenon was a main responsible for the crushing of the suspended silicon particles.

(628) 強ひずみ加工法で作製した超微細粒Alの熱的安定性に及ぼすZr添加の影響

九大院 ○長谷川秀明、九大学生 川原洋昭、九大工 堀田善治、福教大 古川 稔、九大工 根本 実

【目的】結晶粒微細化は金属材料の強度や延性改善に有効であり、超塑性出現の可能性も含んでいる。超塑性の出現には、高溫における微細粒組織の安定性も重要となる。本研究では、拘束条件で強ひずみを課すECAP(Equal Channel Angular Pressing)法により、Zrを添加したAlの結晶粒微細化を行い、その微細粒組織の熱的安定性をZr無添加の純Alの場合と比較して系統的に調べた。

【方法】純Al (99.99%) は圧延後673Kで1時間熱処理し、Al-0.12%Zrは903Kで1日間均質化処理し、ECAP法により約400%の強ひずみを与え、結晶粒微細化を行った。各微細粒試料は、室温から723Kまで10種類の温度で各々1時間の等時焼純を行った。その後、透過電子顕微鏡観察により各温度での粒径を測定し、粒成長挙動を調べた。また同様の実験を673Kで12日間時効処理したAl-0.12%Zrについても行い、粒成長挙動を比較した。いずれの試料も機械的試験を行い、強度と延性的評価を行った。

【結果】純Al、均質化処理したAl-0.12%Zr、時効処理したAl-0.12%Zrでは、ほぼ同様に結晶粒径約1 μm の微細組織が得られた。純Alは約473Kで急激な粒成長が見られたが、均質化処理したAl-0.12%Zr、時効処理したAl-0.12%Zrでは約573Kまで微細組織を保つことができた。

昭和38年6月6日第3種郵便物認可
平成9年3月26日発行「まてりあ」定30巻 走説地刊

日本金属学会講演概要

CM200 FEG

電界放電型透過電子顯微鏡 (FE-TEM)

圖文在特長

- ショットキーサーマルFE電子錠(世界初)の採用により、低倍でも高輝度で明るく、かつ複雑な作業(フランジング)を必要としない分析電子顕微鏡を実現しました。
- ツインレンズ(特許)によって可能になる強制磁空間は、ナノプローブ時にも高安定なビームを保証するので分析時に有効です。また、レンズ構成は念入りにプログラミングされ、TEM、STEM、ナノプローブ、マイクロプローブ、CEBD、EDXの各条件を瞬時に得ることが可能です。
- CM200FEGのマイクロプローブスキャンモードはFE-TEMではむずかしい低倍観察に有効です。
- X, Y, Z移動および α , β 傾斜の5軸を完全自動制御するコンピュステージ(Compu-Stage)は、世界で唯一、傾斜も含めた試料ポジションを高精度に記憶、読み出しができます。ナオーダーでの分析には、バックラッシュやドリフトのないコンピュステージが不可欠です。
- 試料位置は常時監視されているため、最適な傾斜条件を、安全、かつ正確に設定できます。
- フィリップスの長年の真空技術や経験にもとづいた真空系は、4室完全差動排気システムを採用しています。きわめて重要な差動排気数(オリフィス)径は200 μm と最小で、耗材寿命が長いと定評があるのはこのためです。

透過電子顕微鏡CMシリーズ(100、
120、200、300kV)に関する詳細は、
下記に記載いたしました。

| | |
|--------------|--------------|
| 0.10 | 0.10 |
| 0.19 | 0.24 |
| 0.5 | 1.2 |
| 1.0 | 1.2 |
| 25-1,600,000 | 25-1,100,000 |
| ±24 | ±40 |

・フィリップス エクトロ オステイクス株式会社

本社 〒106 東京都港区芝園2-13-34(MSビル) TEL(03)3740-5176(直通)
大坂三益 〒105 大阪市北区鶴見町5-36(大阪大坂三益ビル) TEL(06)350-2884(直通)
九州支店 〒812 福岡市博多区中洲3-1-1(博多支店ビル) TEL(092)82-6103(直通)
宮城支店 〒960 宮城県仙台市青葉区泉町1-13-1(泉町ビル) TEL(029)52-9340(代通)
奈良支店 〒510 奈良市東大寺町1-12-34(東大寺ビル) TEL(073)37-5470(代通)

ただ単にいいモノを作る、フィリップスの目指すメーカーはこのようなものではありません。地球上すべての人々と一緒にになって、いま以上のものを創ろうと創造し、向上しようと考えています。そうすることによって、この世界はもっと快適になっていくはずです。この理念のもとに、電子顕微鏡の分野でも、人々と一緒に創造する企業を目指します。Let's make things better(しあわせと一緒につくるために)。

Let's make things better.



PHILIPS

【書類名】 職権訂正データ
 【訂正書類】 特許願

<認定情報・付加情報>

【特許出願人】

【識別番号】 000001144
 【住所又は居所】 東京都千代田区霞が関1丁目3番1号
 【氏名又は名称】 工業技術院長

【特許出願人】

【識別番号】 591045482
 【住所又は居所】 東京都豊島区東池袋3丁目1番1号
 【氏名又は名称】 新エネルギー・産業技術総合開発機構

【代理人】

【識別番号】 220000334
 【住所又は居所】 愛知県名古屋市北区平手町1-1
 【氏名又は名称】 工業技術院名古屋工業技術研究所長

【代理人】

【識別番号】 100102004
 【住所又は居所】 東京都中央区日本橋室町1丁目13番4号 ムロマ
 チ齋藤ビル4階
 【氏名又は名称】 須藤 政彦

【代理人】

【識別番号】 100102004
 【住所又は居所】 東京都中央区日本橋室町1丁目13番4号 ムロマ
 チ齋藤ビル4階
 【氏名又は名称】 須藤 政彦

【提出された物件の記事】

【提出物件名】 新規性喪失の例外証明書 1

出願人履歴情報

識別番号 [000001144]

1. 変更年月日 1990年 9月20日

[変更理由] 新規登録

住 所 東京都千代田区霞が関1丁目3番1号
氏 名 工業技術院長

出願人履歴情報

識別番号 [591045482]

1. 変更年月日 1991年 3月 7日

[変更理由] 新規登録

住 所 東京都豊島区東池袋3丁目1番1号

氏 名 新エネルギー・産業技術総合開発機構